

DERWENT-ACC-NO: 1979-75665B

DERWENT-WEEK: 200392

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: High boiling carboxylic anhydride prodn. -
from corresp. acid and acetic anhydride, intermediate esp.
for herbicides

INVENTOR: DANKERT, G; FINDEISEN, K ; LENTHE, M

PATENT-ASSIGNEE: BAYER AG[FARB]

PRIORITY-DATA: 1978DE-2815541 (April 11, 1978)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
PAGES MAIN-IPC		
EP 4641 A	October 17, 1979	G
000 N/A		
DE 2815541 A	October 18, 1979	N/A
000 N/A		
DK 7901503 A	November 5, 1979	N/A
000 N/A		
JP 54135706 A	October 22, 1979	N/A
000 N/A		
BR 7902223 A	December 4, 1979	N/A
000 N/A		

DESIGNATED-STATES: BE CH DE FR GB IT NL

CITED-DOCUMENTS: FR 784458; US 2075035

INT-CL (IPC): C07C051/56, C07C053/26 , C07C061/08 , C07C063/06

ABSTRACTED-PUB-NO: EP 4641A

BASIC-ABSTRACT:

Prodn. of carboxylic anhydrides (I) comprises reacting the corresp. acids (II) with acetic anhydride (III) at normal or reduced pressure in a continuous or discontinuous reaction - distillation system with simultaneous sepn.

of (I) and
acetic acid. (R = phenyl (opt. substd. by methyl, ethyl, halo, CF3.
CH3O,
C2H5O, CH3OCO, C2H5OCO, CN or NO2), cyclohexyl or tert. butyl).

Reaction is pref. in a continuous reaction - distillation column, or
discontinuously in a stirred reactor fitted with an efficient
distillation
system.

(I) are synthetic intermediates e.g. for herbicides such as
3-methyl-4-amino-6-phenyl-1,2,4-triazin-5-one.

Process gives almost quantitative yields of very pure (I) with short
reaction
times. Waste gases and waste waters are not generated.

TITLE-TERMS: HIGH BOILING CARBOXYLIC ANHYDRIDE PRODUCE CORRESPOND
ACID ACETIC

ANHYDRIDE INTERMEDIATE HERBICIDE

DERWENT-CLASS: C03 E19

CPI-CODES: C10-A15; C10-A25; E10-A15A; E10-A15E; E10-A25;

CHEMICAL-CODES:

Chemical Indexing M2 *01*

Fragmentation Code

K0 M282 M210 M213 M214 M233 M260 M313 M314 M320
L543 M620 N000 M510 M520 M530 M540 M720 M416 M902

Chemical Indexing M2 *02*

Fragmentation Code

K0 M320 M280 G563 G599 L543 N000 M510 M520 M530
M542 M720 M415 M902

Chemical Indexing M2 *03*

Fragmentation Code

K0 M282 M210 M211 M212 M231 M240 M270 M311 M312
M332 M322 M320 M280 M340 M344 M350 M392 G100 M532
L140 L199 L543 J231 J232 H341 H342 H343 H541 H542
H543 H601 H608 H609 H685 H602 H600 N000 M510 M520
M540 M720 M414 M902

Chemical Indexing M3 *04*

Fragmentation Code

K0 M282 M210 M213 M214 M233 M260 M313 M314 M320
L543 M620 N000 N340 M510 J0 M520 M530 M540 M720
M416 M902

Chemical Indexing M3 *05*

Fragmentation Code

K0 M320 M280 G563 G599 L543 N000 N340 M510 J0
M520 M530 M542 M720 M415 M902

Chemical Indexing M3 *06*

Fragmentation Code

K0 M282 M210 M211 M212 M231 M240 M270 M311 M312
M332 M322 M320 M280 M340 M344 M350 M392 G100 M532
L140 L199 L543 J231 J232 H341 H342 H343 H541 H542
H543 H601 H608 H609 H685 H602 H600 N000 N340 M510
J0 M520 J013 M540 M720 M414 M902

Chemical Indexing M2 *04*

Fragmentation Code

G000 G003 G030 G033 G034 G035 G036 G037 G038 G039
G563 G599 K0 L543 M280 M320 M415 M510 M520 M530
M542 M720 M903 N000

Chemical Indexing M2 *05*

Fragmentation Code

G000 G001 G010 G011 G012 G013 G014 G015 G016 G017
G018 G019 G100 H341 H342 H343 H541 H542 H543 H600
H601 H602 H607 H608 H609 H641 H642 H643 H681 H682
H684 H685 H686 H689 J011 J012 J013 J014 J231 J232
K0 L140 L141 L143 L145 L199 L543 M210 M211 M212
M231 M240 M270 M280 M282 M311 M312 M320 M322 M332
M340 M344 M350 M392 M414 M510 M520 M532 M540 M720
M903 N000

Chemical Indexing M3 *07*

Fragmentation Code

G000 G003 G030 G033 G034 G035 G036 G037 G038 G039
G563 G599 J0 K0 L543 M280 M320 M415 M510 M520
M530 M542 M720 M903 N000 N340

Chemical Indexing M3 *08*

Fragmentation Code

G000 G001 G010 G011 G012 G013 G014 G015 G016 G017
G018 G019 G100 H341 H342 H343 H541 H542 H543 H600
H601 H602 H607 H608 H609 H641 H642 H643 H681 H682
H684 H685 H686 H689 J0 J011 J012 J013 J014 J231
J232 K0 L140 L141 L143 L145 L199 L543 M210 M211
M212 M231 M240 M270 M280 M282 M311 M312 M320 M322
M332 M340 M344 M350 M392 M414 M510 M520 M532 M540
M720 M903 N000 N340

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

Anmeldenummer: 79100942.6

Int. Cl.²: **C 07 C 51/56**
C 07 C 63/06, C 07 C 53/26
C 07 C 61/08

Anmeldetag: 29.03.79

Priorität: 11.04.78 DE 2815541

Veröffentlichungstag der Anmeldung:
 17.10.79 Patentblatt 79/21

Benannte Vertragsstaaten:
 BE CH DE FR GB IT NL

Anmelder: **BAYER Aktiengesellschaft**
 Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen Bayerwerk
 D-5090 Leverkusen 1(DE)

Erfinder: **Lenthe, Manfred, Dr.**
 Michaelshöhe 40
 D-5074 Odenthal(DE)

Erfinder: **Findelsen, Kurt, Dr.**
 In der Follmühle 10
 D-5074 Odenthal(DE)

Erfinder: **Dankert, Gerhard, Dr.**
 Arthur-Hantzsch-Strasse 44
 D-5000 Köln 80(DE)

Erfinder: **Grah, Gerd**
 Goethestrasse 2
 D-5657 Haan(DE)

Verfahren zur Herstellung von Carbonsäureanhydriden.

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur abluft- und
 abwasserfreien Herstellung von Carbonsäureanhydriden wie
 Benzoesäureanhydrid und Pivalinsäureanhydrid aus den
 entsprechenden Carbonsäuren und Essigsäureanhydrid. Die
 Umsetzung wird erfindungsgemäß in einer bei Normaldruck
 oder vermindertem Druck kontinuierlich oder diskontinuier-
 lich betriebenen Reaktions-Destillations-Apparatur (vgl. Fig.
 1) unter gleichzeitiger Trennung der Reaktionsprodukte
 Carbonsäureanhydrid und Essigsäure durchgeführt.

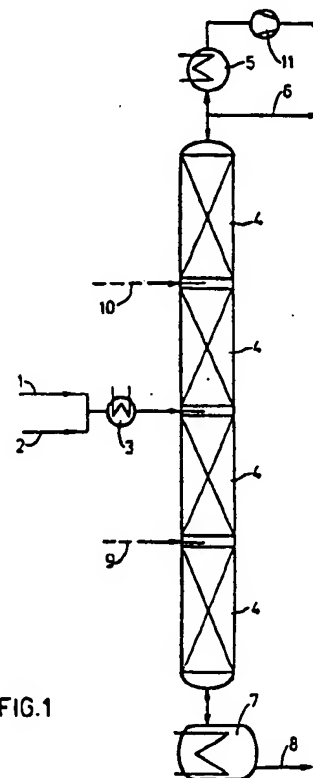


FIG.1

EP 0 004 641 A2

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT
Zentralbereich
Patente, Marken und Lizenzen

5090 Leverkusen, Bayerwerk
Bi-by-Bs
IVa/2P

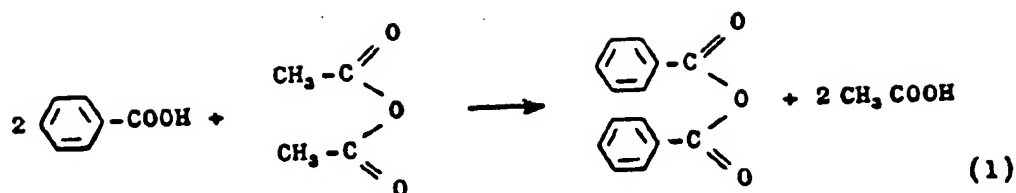
Verfahren zur Herstellung von Carbonsäureanhydriden

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur ab-
luft- und abwasserfreien Herstellung von bestimmten,
relativ hoch siedenden Carbonsäureanhydriden, wie Benzoe-
säureanhydrid und Pivalinsäureanhydrid, aus den ent-
5 sprechenden Carbonsäuren und Essigsäureanhydrid in
technischem Maßstab, in einer kontinuierlich oder dis-
kontinuierlich betriebenen Destillations-Apparatur unter
gleichzeitiger Abtrennung des Leichtsieders Essigsäure.
Carbonsäureanhydride sind wertvolle Zwischenprodukte für
10 zahlreiche Synthesen der organischen Chemie.

Die Gewinnung von Benzoesäureanhydrid aus Benzoesäure und
Essigsäureanhydrid als Wasserakzeptor gemäß Reaktions-
schema (1)

Le A 18 770-EP

- 2 -

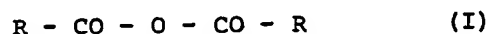


ist eine lange bekannte Reaktion und gelingt mit Ausbeuten von maximal 81 % (Ber. 42, S. 3483 (1909); vgl. auch Houben-Weyl, Methoden der Organischen Chemie, Band VIII, S. 476
 5 (1952); ferner Org. Synth. Coll. Vol. I, S. 91). Nachteilig bei diesem bekannten Verfahren sind der sehr hohe Einsatzüberschuß an Essigsäureanhydrid, der zur Erzielung der genannten Ausbeute mindestens 100 % betragen muß, die hohe Reaktionszeit von z.B. 6 Stunden und die aufgrund der
 10 Reaktionsbedingungen erforderliche aufwendige Produktionsanlage mit hohen Energie- und Personalkosten.

Andere bekannte Verfahren gehen aus von Benzoylchlorid oder Benzotrichlorid (vgl. die oben zit. Literaturstellen in Houben-Weyl und Org. Synth.). Aber auch bei diesen
 15 Verfahren ist ein hoher technischer Aufwand erforderlich, und es fallen salzhaltige Abwässer an, die eine technische Nutzung unwirtschaftlich machen.

Eine direkte thermische Dehydratisierung ist bei den hier interessierenden Carbonsäuren nicht durchführbar.

20 Es wurde nun gefunden, daß man nach (1) die Carbonsäureanhydride der Formel



in welcher

R für gegebenenfalls substituiertes Phenyl, Cyclohexyl
oder tert.-Butyl steht,

- 5 in praktisch quantitativer Ausbeute, hoher Reinheit und
in extrem kurzen Reaktionszeiten erhält, wenn man ein
- vorzugsweise stöchiometrisches - Gemisch aus einer Carbon-
säure der Formel



in welcher

- 10 R die oben angegebene Bedeutung hat,

- und Essigsäureanhydrid in eine unter Normaldruck oder
verminderten Druck kontinuierlich betriebene Destillations-
kolonne einführt. Man erhält ein Kopfprodukt mit einem
Gehalt von 98 - 100 % Essigsäure (Rest: Essigsäureanhydrid)
15 und ein ebenso hochreines farbloses Carbonsäureanhydrid
im Sumpf; die Ausbeuten an Carbonsäureanhydrid (I) er-
reichen 100 %. Es treten hierbei weder Abluft noch Ab-
wasser auf.

- Die durch Formel (II) repräsentierten Ausgangsprodukte
20 sind Benzoesäure, substituierte Benzoesäuren, Hexahydro-
benzoesäure (= Cyclohexancarbonsäure) und Pivalinsäure
(= Trimethylessigsäure). Die Benzoesäure kann beispielsweise
durch folgende bevorzugte Reste substituiert sein:

Le A 18 770

Methyl, Äthyl, Halogen (insbesondere Chlor), Trifluor-methyl, Methoxy, Äthoxy, Methoxycarbonyl, Äthoxycarbonyl, Cyano oder Nitro. Besonders bevorzugt ist Benzoesäure, ferner Pivalinsäure.

- 5 Das erfindungsgemäße Verfahren kann im Druckbereich zwischen 1000 und 10 mbar durchgeführt werden. Wegen der relativ hohen Siedepunkte der gebildeten Carbonsäureanhydride (I), (z.B. 360°C für Benzoesäureanhydrid) betreibt man die Kolonne zweckmäßigerweise bei vermindertem Druck, vor-
- 10 zugsweise im Bereich zwischen 300 und 10 mbar, insbesondere im Bereich zwischen 200 und 20 mbar; in Abhängigkeit vom gewählten Betriebsdruck stellen sich die Temperaturen in der Kolonne ein.

- Grundsätzlich ist auch eine Verfahrensweise unter erhöhtem Druck denkbar. Die dabei auftretenden hohen Sumpftemperaturen lassen dies jedoch als weniger zweckmäßig erscheinen.
- 15

- Die besten Ausbeuten, bezogen auf die eingesetzte Carbonsäure (II), lassen sich bei stöchiometrischem Einsatzver-
- 20 hältnis oder mäßigem Essigsäureanhydridüberschuß erzielen. Bei Anhydridmangel kann zwar ein Essigsäureanhydrid-freies Destillat gewonnen werden, dafür enthält das Produkt jedoch nichtumgesetzte Carbonsäure (II). In Frage kommt ein Einsatzverhältnis von etwa 0,5 bis 0,75 Mol, vorzugsweise von
- 25 0,5 Mol, Essigsäureanhydrid pro Mol Carbonsäure (II).

Üblicherweise wird eine Destillationskolonne mit einem einzigen Zulauf betrieben, über den das vorgewärmte Gemisch zugeführt wird. (Vgl. Fig. 1) Bei dieser Betriebsart werden auch hier die angegebenen, sehr guten Ergebnisse erzielt.

Eine weitere Verbesserung des Verfahrens läßt sich jedoch dadurch erreichen, daß die Zuläufe für Essigsäureanhydrid und Carbonsäure (II) getrennt werden, und zwar so, daß Essigsäureanhydrid im unteren Teil, die Carbonsäure dagegen im oberen Teil der Kolonne zugeführt wird (vgl. ebenfalls Fig. 1). Mit dieser Variante kann entweder die Stufenzahl der Destillationskolonne vermindert oder die Kolonne bei einem kleineren Rücklauf-Destillat-Verhältnis betrieben werden, wodurch eine höhere Belastbarkeit der Apparatur bewirkt wird. In beiden Fällen werden Abschreibungskosten eingespart.

Mit gleich hohen Ausbeuten läßt sich die Reaktion auch diskontinuierlich durchführen, indem ein Rührkessel mit einem gut trennenden Destillationsaufsatz versehen wird. Das Carbonsäure-Essigsäureanhydrid-Gemisch wird bei Normaldruck oder vermindertem Druck zum Sieden erhitzt, und das Rücklaufverhältnis wird so eingestellt, daß am Kopf reine Essigsäure entnommen wird. Arbeitet man bei vermindertem Druck, so gilt der gleiche Druckbereich wie oben für die kontinuierliche Verfahrensweise angegeben. Auch für das Einsatzverhältnis der Ausgangsprodukte gelten die obigen Angaben.

Die diskontinuierliche Verfahrensweise ist ebenso umweltfreundlich wie die oben beschriebene kontinuierliche, da ebenfalls keine Abluft und kein Abwasser auftreten.

- 5 Gegenüber den bekannten Verfahren zeichnet sich die neue Technik durch weitere wesentliche Vorteile aus, welche direkten Einfluß auf die Wirtschaftlichkeit des Verfahrens nehmen:

- 10 Durch die Möglichkeit, die Komponenten exakt stöchiometrisch einzusetzen, wird die Trennung von Essigsäure- Essigsäureanhydrid-Gemischen vermieden, die sonst mit zusätzlichen Investitions- und vor allem hohen Energiekosten durchgeführt werden müßte. Die hier anfallende Essigsäure, die maximal nur ca. 2 % Essigsäureanhydrid enthält, kann ohne weitere Reinigungsmaßnahmen einem Abnehmer zugeführt werden.
- 15 Die zur Produktion benötigte Anlage besteht im wesentlichen nur noch aus einem einzigen Apparat - im Falle der bevorzugten kontinuierlichen Verfahrensweise aus einer Reaktions-Destillations-Kolonne (vgl. Fig. 1), im Falle der diskontinuierlichen Verfahrensweise aus der oben be-
- 20 schriebenen, etwas modifizierten Reaktions-Destillations-Apparatur - welcher, verglichen mit den für die bekannten Verfahren benötigten aufwendigen Anlagen, geringere Abschreibungen und Personalkosten erfordert.

- 25 Carbonsäureanhydride werden häufig verwendet als Ersatzchemikalien für Säurechloride mit einer vergleichbaren chemischen Reaktionsfähigkeit, aber ohne die bei der Verwendung von Säurechloriden auftretende Korrosion zu ver-

ursachen. Auch die Verwendung von Carbonsäureanhydriden als Zwischenprodukte für Wirkstoffe des Pflanzenschutzes ist möglich: z.B. können die Carbonsäureanhydride (I) zur Herstellung von 1,2,4-Triazin-5-onen eingesetzt werden, 5 welche hervorragende herbizide Eigenschaften besitzen. So läßt sich beispielsweise, ausgehend von Benzoesäureanhydrid, das bekannte, herbizid wirksame 3-Methyl-4-amino-6-phenyl-1,2,4-triazin-5-on (common name: Metamitron) herstellen (vgl. DE-OS 2 224 161, ferner DE-OS 2 614 240 10 und DE-OS 2 614 242).

In analoger Weise können aus Cyclohexancarbonsäureanhydrid und Pivalinsäureanhydrid z.B. die herbizid wirksamen Verbindungen 3-tert.-Butyl-4-amino-6-cyclohexyl-1,2,4-triazin-5-on bzw. 3-Äthyl-4-amino-6-tert.-butyl-15 1,2,4-triazin-5-on (vgl. US-PS 3 874 914) hergestellt werden.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird durch die nachfolgenden Herstellungsbeispiele veranschaulicht.

Herstellungsbeispiele

Bei den Versuchen zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einer kontinuierlich betriebenen Destillationskolonne wurde eine Apparatur benutzt, wie sie in der Fig. 1 dargestellt ist.

Die Reaktanden Essigsäureanhydrid (1) und Carbonsäure (II) (z.B. geschmolzene Benzoesäure) (2) werden in einem Vorheizer (3) vermischt, auf 150°C geheizt und in die Kolonne gegeben (4), die in vier Schüsse unterteilt ist, deren Packungshöhe 850 mm bei einem Durchmesser von 50 mm beträgt. Die Schüsse sind mit einer elektrischen Schutzheizung versehen, die ein Temperaturgefälle zwischen Säuleninnerem und Mantel von 15°C erzeugt.

Das Destillat (6) wird am Kopf der Kolonne (5) über einen Rücklaufteiler entnommen, das Produkt, Carbonsäureanhydrid (I) (z.B. Benzoesäureanhydrid) wird im Sumpfablauf (7)→(8) gewonnen.

Der Betriebsdruck der Anlage wird am Kopf gemessen und mittels Pumpe und Fremdluftventil konstant gehalten (11).

20 Beispiel 1

In die beschriebene Anlage (Fig. 1) werden 2665 g/h Benzoesäure und 1120 g/h Essigsäureanhydrid über einen gemeinsamen Vorwärmer eingegeben. Der Betriebsdruck beträgt am

Kopf der Kolonne 100 mbar, die Sumpftemperatur 188°C und die Kopf­temperatur 57,4°C bei einem Rücklaufverhältnis von 3:1. Nach Erreichen des stationären Zustandes werden vom Sumpf 2510 g/h Produkt entnommen mit
5 einem Gehalt von 98,0 Benzoesäureanhydrid. Die Ausbeute beträgt 99,7 %. Das Destillat besteht aus reiner Essigsäure und fällt mit 1280 g/h an.

Beispiel 2

In die Anlage gemäß Beispiel 1 werden bei einem Druck
10 von 50 mbar 2665 g/h Benzoesäure und 1139 g/h Essigsäureanhydrid über einen gemeinsamen Vorwärmer eingefahren. Bei einer Kopf­temperatur von 44,3°C werden 1033 g/h Destillat mit einem Gehalt von 100 % Essigsäure und bei der Sumpftemperatur von 193°C ein Produktstrom von
15 2500 g/h mit einem Benzoesäureanhydridgehalt von 98,7 %, Rest Benzoesäure, erhalten. Das Rücklaufverhältnis beträgt (wie in Beispiel 1) 3:1. Die Ausbeute beträgt 100 %.

Beispiel 3

20 Für das folgende Beispiel wurde die Kolonne so verändert, wie es in der Fig. 1 durch die gestrichelten Linien angedeutet wird. Der gemeinsame Zulauf der beiden Komponenten wird ersetzt durch zwei einzelne Zuläufe. Essigsäureanhydrid

- 10 -

(9) wird oberhalb des unteren Viertels der Kolonne, Benzoessäure (10) dagegen unterhalb des oberen Viertels zugeführt. Beide Komponenten werden in nicht eingezeichneten Wärmeaustauschern vorgeheizt: Essigsäureanhydrid auf 50°C, Benzoessäure auf 150°C.

In diese Apparatur werden bei einem Druck von 50 mbar 2665 g/h Benzoessäure und 1132 g/h Essigsäureanhydrid eingebracht. Die Sumpftemperatur wird auf 191°C eingestellt, und bei einem Rücklaufverhältnis von 2:1 wird eine Kopftemperatur von 44,5°C erreicht. Es werden 1190 g/h Destillat erhalten mit 100 % Essigsäure und 2480 g/h Sumpfablauf mit 99,2 % Benzoessäureanhydrid entsprechend einer Ausbeute von 99,7 %.

Beispiel 4

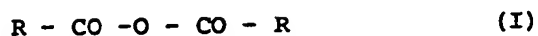
Dieses Beispiel dient zur Erläuterung der diskontinuierlichen Verfahrensführung. Ein 4-ltr.-Glaskolben wird mit einem Destillationsaufsatz versehen, der bei einem Durchmesser von 50 mm eine Packungshöhe von 850 mm hat. Die Einstellung des Rücklaufverhältnisses erfolgt über einen Dampfteiler.

1710 g Benzoessäure und 763 g Essigsäureanhydrid werden in dieser Apparatur bei 100 mbar zum Sieden erhitzt. Bei einem Rücklaufverhältnis von 5:1 wird der Druck gleichmäßig innerhalb von 3 Stunden auf 20 mbar gesenkt.

- 11 -

Die Sumpftemperatur steigt von anfänglich 100°C auf zum
Schluß 180°C. Es wird ein Sumpf von 1580 g mit einem
Gehalt von 99 % Benzoessäureanhydrid und 887 g Destillat
mit 91,5 % Essigsäure und 8,5 % Essigsäureanhydrid ge-
5 wonnen. Die Ausbeute beträgt 98,6 %.

Le A 18 770

Patentansprüche1. Verfahren zur Herstellung von Carbonsäureanhydriden
der Formel

5 in welcher

R für gegebenenfalls durch Methyl, Äthyl, Halogen, Tri-
fluormethyl, Methoxy, Äthoxy, Methoxycarbonyl,
Äthoxycarbonyl, Cyano oder Nitro substituiertes Phenyl,
15 Cyclohexyl oder tert.-Butyl steht,

10 aus den entsprechenden Carbonsäuren, R-COOH (II) und
Essigsäureanhydrid, dadurch gekennzeichnet, daß die
Reaktion in einer bei Normaldruck oder vermindertem
Druck kontinuierlich oder diskontinuierlich betriebenen
Reaktions-Destillations-Apparatur unter gleichzeitiger
15 Trennung der Reaktionsprodukte Carbonsäureanhydrid (I)
und Essigsäure durchgeführt wird.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet,
daß die Reaktion in einer kontinuierlich betriebenen
Reaktions-Destillations-Kolonne durchgeführt wird.

- 13 -

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktion diskontinuierlich durchgeführt wird, in einer Apparatur bestehend aus einem Rührkessel mit gut trennendem Destillationsaufsatz.
- 5 4. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Ausgangsprodukte Carbonsäure (II) und Essigsäureanhydrid durch getrennte Zuläufe in die Kolonne eingeführt werden, und zwar dergestalt, daß die Carbonsäure (II) im oberen Teil der Kolonne, und Essigsäureanhydrid im unteren Teil der Kolonne, zugeführt werden.
- 10
5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktion im Druckbereich zwischen 1000 und 10 mbar, insbesondere im Bereich zwischen 200 und 15 20 mbar durchgeführt wird.
6. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß auf 1 Mol Carbonsäure (II) 0,5 bis 0,75 Mol, vorzugsweise 0,5 Mol, Essigsäureanhydrid eingesetzt werden.
- 20 7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Carbonsäure (II) Benzoesäure eingesetzt wird.
8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Carbonsäure (II) Cyclohexancarbonsäure eingesetzt wird.

- 14 -

9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Carbonsäure (II) Pivalinsäure eingesetzt wird.

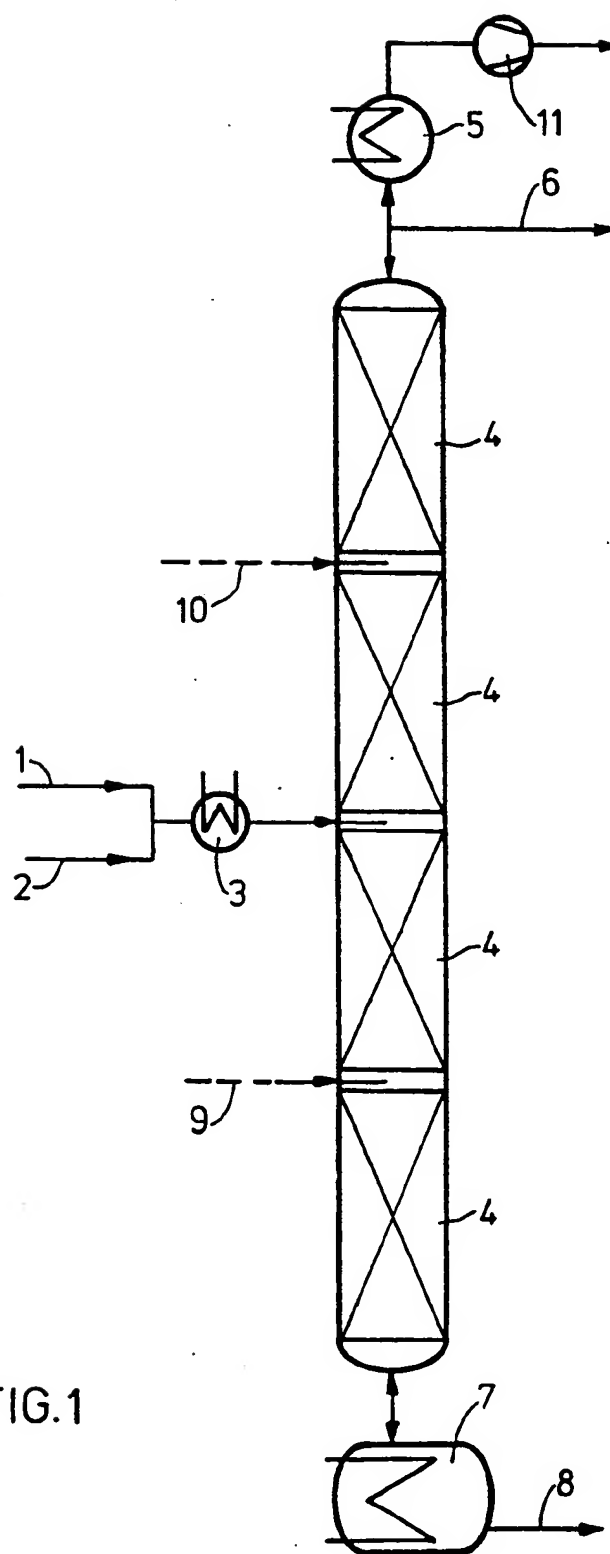
$\frac{1}{1}$ 

FIG.1